

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/005341

International filing date: 24 March 2005 (24.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-085915  
Filing date: 24 March 2004 (24.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 12 May 2005 (12.05.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 4 年 3 月 2 4 日

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 4 - 0 8 5 9 1 5

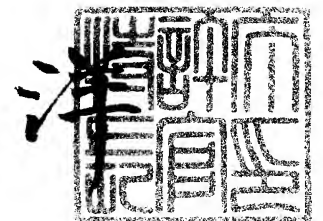
パリ条約による外国への出願  
に用いる優先権の主張の基礎  
となる出願の国コードと出願  
番号  
J P 2 0 0 4 - 0 8 5 9 1 5  
The country code and number  
of your priority application,  
to be used for filing abroad  
under the Paris Convention, is

出 願 人  
Applicant(s): 日本碍子株式会社

2 0 0 5 年 4 月 2 0 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



【書類名】	特許願
【整理番号】	WP04589
【提出日】	平成16年 3月 24日
【あて先】	特許庁長官 今井 康夫 殿
【国際特許分類】	C04B 38/00
【発明者】	
【住所又は居所】	愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社内
【氏名】	林 伸三
【発明者】	
【住所又は居所】	愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社内
【氏名】	末信 宏之
【特許出願人】	
【識別番号】	000004064
【氏名又は名称】	日本碍子株式会社
【代理人】	
【識別番号】	100088616
【弁理士】	
【氏名又は名称】	渡邊 一平
【手数料の表示】	
【予納台帳番号】	009689
【納付金額】	21,000円
【提出物件の目録】	
【物件名】	特許請求の範囲 1
【物件名】	明細書 1
【物件名】	要約書 1
【包括委任状番号】	9001231

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

化学成分として少なくとも S i が含まれているセラミック多孔質体であって、成形原料中に多孔質のシリカ粉末を添加して坏土化し、得られたセラミック坏土を所定形状に成形した後、焼成することにより得られたセラミック多孔質体。

【請求項 2】

前記シリカ粉末が前記焼成の過程で熔融した後、他の成形原料成分と反応してシリカ含有化合物となっている請求項 1 に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 3】

前記シリカ含有化合物がコージェライト組成の化合物である請求項 2 に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 4】

前記シリカ粉末が不定形シリカ粉末である請求項 1 ないし 3 の何れか一項に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 5】

前記シリカ粉末の嵩密度が  $1 \text{ g} / \text{cm}^3$  以下である請求項 1 ないし 4 の何れか一項に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 6】

前記シリカ粉末の嵩密度が  $0.2 \sim 1 \text{ g} / \text{cm}^3$  である請求項 1 ないし 4 の何れか一項に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 7】

前記シリカ粉末の添加量が当該粉末添加後における前記成形原料全体の 40 体積% 以下である請求項 1 ないし 6 の何れか一項に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 8】

前記セラミック多孔質体がハニカム形状を有する請求項 1 ないし 7 の何れか一項に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 9】

化学成分として少なくとも S i が含まれているセラミック多孔質体であって、成形原料中に多孔質のシリカ含有化合物の粉末を添加して坏土化し、得られたセラミック坏土を所定形状に成形した後、焼成することにより得られたセラミック多孔質体。

【請求項 10】

前記シリカ含有化合物がコージェライト組成の化合物である請求項 9 に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 11】

前記シリカ含有化合物の粉末が不定形シリカ含有化合物の粉末である請求項 9 に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 12】

前記シリカ含有化合物の粉末の嵩密度が  $1 \text{ g} / \text{cm}^3$  以下である請求項 9 ないし 11 の何れか一項に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 13】

前記シリカ含有化合物の粉末の嵩密度が  $0.2 \sim 1 \text{ g} / \text{cm}^3$  である請求項 9 ないし 11 の何れか一項に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 14】

前記シリカ含有化合物の粉末の添加量が当該粉末添加後における前記成形原料全体の 40 体積% 以下である請求項 9 ないし 13 の何れか一項に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 15】

前記セラミック多孔質体がハニカム形状を有する請求項 9 ないし 14 の何れか一項に記載のセラミック多孔質体。

【請求項 16】

化学成分として少なくとも S i が含まれているセラミック多孔質体であって、成形原料

中に多孔質マグネシウムシリケートの粉末を、その添加量が当該粉末添加後における前記成形原料全体の40体積%以下となるように添加して坏土化し、得られたセラミック坏土を所定形状に成形した後、焼成することにより得られたセラミック多孔質体。

【請求項17】

前記多孔質マグネシウムシリケートの粉末の嵩密度が $1\text{ g/cm}^3$ 以下である請求項16に記載のセラミック多孔質体。

【請求項18】

前記多孔質マグネシウムシリケートの粉末の嵩密度が $0.2\sim 1\text{ g/cm}^3$ である請求項16に記載のセラミック多孔質体。

【請求項19】

前記セラミック多孔質体がハニカム形状を有する請求項16ないし18の何れか一項に記載のセラミック多孔質体。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 セラミック多孔質体

【技術分野】

【0001】

本発明は、フィルターや触媒担体などに使用されるセラミック多孔質体に関し、更に詳しくは、製造時において、有害ガスの発生を防止できるとともに、造孔特性の変化や成形体の変形が生じにくいようなセラミック多孔質体に関する。

【背景技術】

【0002】

セラミック多孔質体は、フィルターや触媒担体などに多く用いられており、例えば内燃機関等の熱機関又はボイラー等の燃焼装置における排気ガス浄化装置、液体燃料又は気体燃料の改質装置、上下水の浄化処理装置等に使用されている。このようなセラミック多孔質体は、一般にセラミックスの粉末に造孔剤を添加し、更にバインダー、成形助剤、水などを加えて混練し、これを所定の形状に成形した後、焼成することにより得られる。造孔剤は、セラミック多孔質体中の気孔を増加させ、気孔の大きさや量を制御するために用いられている。

【0003】

従来、セラミック多孔質体の製造に使用する造孔剤としては、焼成時に焼失する樹脂粉末やカーボン粉末が一般的であるが、これらは可燃分が多いため、焼成時間が増加したり、焼成時に炭酸ガスや有害ガスが発生するという問題がある。

【0004】

このような問題を回避するため、発泡樹脂等の中空の樹脂粒子や架橋処理澱粉等の水膨潤粒子を造孔剤に用いる方法も試みられているが（例えば、特許文献1、2参照）、中空の樹脂粒子を用いた場合には、当該粒子の成形時の潰れにより造孔特性が所望の特性から変化し、水膨潤粒子を用いた場合には、成形時の成形体強度が低くなり、変形を起こしやすいという問題がある。また、これら何れの粒子を造孔剤に用いる場合においても、可燃分をゼロにすることはできないため、程度の差はあるものの、前述のカーボン粉末等を用いた場合と同様の問題が生じる。

【特許文献1】 特開2002-326879号公報

【特許文献2】 特開2003-238271号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明は、このような従来の事情に鑑みてなされたものであり、その製造時において、造孔剤の可燃分に由来する焼成時間の増加や有害ガス等の発生を回避でき、造孔特性の変化や成形体の変形も生じにくいセラミック多孔質体を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0006】

本発明によれば、化学成分として少なくともSiが含まれているセラミック多孔質体であって、成形原料中に多孔質のシリカ粉末を添加して坏土化し、得られたセラミック坏土を所定形状に成形した後、焼成することにより得られたセラミック多孔質体（第一のセラミック多孔質体）が提供される。

【0007】

また、本発明によれば、化学成分として少なくともSiが含まれているセラミック多孔質体であって、成形原料中に多孔質のシリカ含有化合物の粉末を添加して坏土化し、得られたセラミック坏土を所定形状に成形した後、焼成することにより得られたセラミック多孔質体（第二のセラミック多孔質体）が提供される。

【0008】

更に、本発明によれば、化学成分として少なくともSiが含まれているセラミック多孔質体であって、成形原料中に多孔質マグネシウムシリケートの粉末を、その添加量が当該

粉末添加後における前記成形原料全体の40体積%以下となるように添加して坏土化し、得られたセラミック坏土を所定形状に成形した後、焼成することにより得られたセラミック多孔質体（第三のセラミック多孔質体）が提供される。

#### 【発明の効果】

##### 【0009】

本発明のセラミック多孔質体は、製造時の造孔剤として、多孔質のシリカ粉末、多孔質のシリカ含有化合物の粉末、又は多孔質マグネシウムシリケートの粉末を用いたことにより、焼成時における炭酸ガスや有害ガスの発生が無く、焼成時間も従来の樹脂粉末やカーボン粉末を造孔剤に用いた場合より短縮することができる。更に、成形時の造孔特性の変化や成形体の変形も起こりにくい。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

##### 【0010】

前述のとおり、本発明の第一のセラミック多孔質体は、化学成分として少なくともSiが含まれているセラミック多孔質体であって、成形原料中に多孔質のシリカ粉末を添加して坏土化し、得られたセラミック坏土を所定形状に成形した後、焼成することにより得られたものである。また、本発明の第二のセラミック多孔質体は、化学成分として少なくともSiが含まれているセラミック多孔質体であって、成形原料中に多孔質のシリカ含有化合物の粉末を添加して坏土化し、得られたセラミック坏土を所定形状に成形した後、焼成することにより得られたものである。更に、本発明の第三のセラミック多孔質体は、化学成分として少なくともSiが含まれているセラミック多孔質体であって、成形原料中に多孔質マグネシウムシリケートの粉末を所定量添加して坏土化し、得られたセラミック坏土を所定形状に成形した後、焼成することにより得られたものである。

##### 【0011】

本発明の第一のセラミック多孔質体における多孔質のシリカ粉末、第二のセラミック多孔質体における多孔質のシリカ含有化合物の粉末、及び第三のセラミック多孔質体における多孔質マグネシウムシリケートの粉末は、セラミック多孔質体の製造時に、造孔剤として成形原料中に添加されるものであるが、これらの粉末は、何れも焼成時に焼失する可燃分を含まない無機粉末であるので、成形体の焼成時に造孔剤の可燃分に由来する炭酸ガスや有害ガスの発生が無く、焼成時間も従来の樹脂粉末やカーボン粉末を造孔剤に用いた場合より短縮することが可能となる。また、中空の樹脂粒子のように、低強度で容易に潰れるものではないので、成形時に潰れて造孔特性が変化することはない。更に、水膨潤粒子のように多量の水を含んで成形体強度を低下させることもないので、成形体の変形も起こりにくい。

##### 【0012】

本発明のセラミック多孔質体は、造孔剤として多孔質のシリカ粉末、多孔質のシリカ含有化合物の粉末、又は多孔質マグネシウムシリケートの粉末を用いるため、例えばコーゼライトのように、化学成分として少なくともSiが含まれているセラミック多孔質体である必要があり、前記のような造孔剤を所定量添加した状態で、目的とする組成となるように成形原料を配合する。

##### 【0013】

第一のセラミック多孔質体に用いられる多孔質のシリカ粉末としては、不定形シリカ粉末（非晶質シリカ粉末）であることが好ましく、具体的には、シリカゲルが好適に使用できる。また、第二のセラミック多孔質体に用いられる多孔質のシリカ含有化合物の粉末としては、不定形シリカ含有化合物の粉末であることが好ましく、また、その化合物の組成としては、例えばコーゼライト組成のものが好ましく使用できる。

##### 【0014】

第一のセラミック多孔質体に用いられる多孔質のシリカ粉末、第二のセラミック多孔質体に用いられる多孔質のシリカ含有化合物の粉末、及び第三のセラミック多孔質体に用いられる多孔質マグネシウムシリケートの粉末は、何れもその嵩密度が $1\text{ g/cm}^3$ 以下であることが好ましく、 $0.2\sim 1\text{ g/cm}^3$ であるとより好ましい。これら粉末の嵩密度

が  $1 \text{ g/cm}^3$  を超えると当該粉末による造孔機能が低くなって、所望の多孔質体を得難くなり、 $0.2 \text{ g/cm}^3$  未満であると焼成時に当該粉末成分の融点近くで、大きな収縮をきたすために、造孔機能の低下（気孔率の低下）や成形体のクラック発生の要因となる。

#### 【0015】

第一のセラミック多孔質体に用いられる多孔質のシリカ粉末、及び第二のセラミック多孔質体に用いられる多孔質のシリカ含有化合物の粉末の添加量は、当該粉末添加後における成形原料全体の40体積%以下とすることが好ましい。これら粉末の添加量が成形原料全体の40体積%程度となるまでは、その添加量の増加に伴って、得られるセラミック多孔質体の気孔率が上昇するが、40体積%を超えると、焼成時における成形体の収縮量が大きくなって、却って気孔率が低下する傾向にある。

#### 【0016】

また、第三のセラミック多孔質体に用いられる多孔質マグネシウムシリケートの粉末の添加量は、当該粉末添加後における成形原料全体の40体積%以下とする。この粉末の添加量が成形原料全体の40体積%程度となるまでは、その添加量の増加に伴って、得られるセラミック多孔質体の気孔率が上昇するが、40体積%を超えると、焼成時における成形体の収縮量が大きくなって、却って気孔率が低下する。

#### 【0017】

造孔剤として使用するこれら粉末は、セラミックス粉末等の成形原料に添加され、更にこれにバインダー、成形助剤、水などを加えて混練することにより坏土化される。そして、このセラミック坏土を所定形状に成形した後、焼成することにより本発明のセラミック多孔質体を得られる。

#### 【0018】

造孔剤として多孔質のシリカ粉末を使用した場合、通常、当該シリカ粉末は、焼成の過程で熔融した後、他の成形原料成分と反応してシリカ含有化合物となる。例えば、成形原料と造孔剤である多孔質のシリカ粉末とがコージェライト組成となるように配合されている場合には、熔融したシリカ粉末は、焼成過程で他の成形原料成分と反応し、最終的にコージェライト組成の化合物となってセラミック多孔質体中に残存する。

#### 【0019】

本発明の第一～第三のセラミック多孔質体の形状には特に制限はなく、その使用目的に応じて適宜選択することができる。例えば、フィルターや触媒担体等に用いる場合には、それらの用途に適した形状として一般的に知られているハニカム形状とすることができる。

#### 【実施例】

##### 【0020】

以下、本発明を実施例に基づいて更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

##### 【0021】

（実施例1～7、比較例1及び2）

造孔剤としてシリカゲル（水澤化学（株）製：P707M（商品名）、平均粒子径： $120 \mu\text{m}$ 、嵩密度： $0.45 \text{ g/cm}^3$ ）、又は多孔質マグネシウムシリケートの粉末（水澤化学（株）製：P-1（商品名）、平均粒子径： $15 \mu\text{m}$ 、嵩密度： $0.85 \text{ g/cm}^3$ ）を使用し、表1に示すように、このシリカゲルの添加量を0～18質量%の範囲で、また、多孔質マグネシウムシリケートの粉末の添加量を0～40質量%の範囲でそれぞれ変化させて、タルク、シリカ、アルミナ、カオリン及び水酸化アルミニウムの粉末とコージェライト組成となるように配合し、成形原料とした。これに成形バインダーとしてメチルセルロース（信越化学（株）製：SM4000（商品名））、成形助剤として界面活性剤及び水を加えて混練し、セラミック坏土を調製した。なお、表1に示すバインダー、成形助剤及び水の配合量は、造孔剤を含む前記成形原料全体の量を100質量%としたときの、それに対する配合量（外配）である。こうして得られたセラミック坏土を用いて、



押し出し成形によりハニカム形状の成形体（直径：40 mm、長さ：100 mm）を作製し、120℃で1時間乾燥した後、1350℃で2時間焼成して、セラミック多孔質体を得た。得られたセラミック多孔質体について、その気孔率を測定し、結果を表1に示した。

【0022】

	嵩密度	比較例 1	比較例 2	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7
タルク	2.6g/cm <sup>3</sup>	40.0 質量%	0.0 質量%	40.0 質量%	40.0 質量%	40.0 質量%	40.0 質量%	40.0 質量%	20.0 質量%	10.0 質量%
カオリン	2.6g/cm <sup>3</sup>	19.0 質量%	19.0 質量%	19.0 質量%	19.0 質量%	19.0 質量%	19.0 質量%	8.0 質量%	19.0 質量%	19.0 質量%
シリカ	2.6g/cm <sup>3</sup>	12.5 質量%	12.5 質量%	0.0 質量%	2.5 質量%	5.0 質量%	7.5 質量%	0.0 質量%	12.5 質量%	12.5 質量%
アルミナ	3.9g/cm <sup>3</sup>	13.5 質量%	13.5 質量%	13.5 質量%	13.5 質量%	13.5 質量%	13.5 質量%	19.0 質量%	13.5 質量%	13.5 質量%
水酸化アルミニウム	2.8g/cm <sup>3</sup>	15.0 質量%	15.0 質量%	15.0 質量%	15.0 質量%	15.0 質量%	15.0 質量%	15.0 質量%	15.0 質量%	15.0 質量%
シリカゲル	0.45g/cm <sup>3</sup>	0.0 質量%	0.0 質量%	12.5 質量%	10.0 質量%	7.5 質量%	5.0 質量%	18.0 質量%	0.0 質量%	0.0 質量%
多孔質マグネシウム シリケート	0.85g/cm <sup>3</sup>	0.0 質量%	40.0 質量%	0.0 質量%	0.0 質量%	0.0 質量%	0.0 質量%	0.0 質量%	20.0 質量%	30.0 質量%
バインダー	1.1g/cm <sup>3</sup>	4.0 質量%	4.0 質量%	4.0 質量%	4.0 質量%	4.0 質量%	4.0 質量%	4.0 質量%	4.0 質量%	4.0 質量%
成形助剤	1.0g/cm <sup>3</sup>	0.5 質量%	0.5 質量%	0.5 質量%	0.5 質量%	0.5 質量%	0.5 質量%	0.5 質量%	0.5 質量%	0.5 質量%
水	1.0g/cm <sup>3</sup>	35.0 質量%	81.0 質量%	48.6 質量%	47.0 質量%	42.0 質量%	39.0 質量%	39.0 質量%	58.0 質量%	69.5 質量%
気孔率		45.0%	48.8%	56.1%	55.4%	53.0%	51.4%	53.5%	58.2%	58.3%

【0023】

表 1 に示すとおり、造孔剤としてシリカゲルを用いた場合、シリカゲルの添加量が 1 2

・ 5 質量%（28 体積%）程度までの範囲においては、シリカゲルの添加量が増加するに伴って気孔率が上昇することがわかった。ただし、シリカゲルの添加量が18 質量%（41 体積%）となると、焼成時の成形体の収縮が大きくなり、添加量が12.5 質量%の場合よりも気孔率が低下した。また、造孔剤として多孔質マグネシウムシリケートの粉末を用いた場合には、その添加量が30 質量%（35.3 体積%）程度までの範囲においては高い気孔率が得られるが、40 質量%（47 体積%）となると、焼成時の成形体の収縮が大きくなり、気孔率が大きく低下した。

#### 【0024】

（実施例8 及び 9、比較例3 及び 4）

造孔剤としてシリカゲル（水澤化学（株）製：P707M（商品名）、平均粒子径：120  $\mu\text{m}$ 、嵩密度：0.45  $\text{g}/\text{cm}^3$ ）を使用した場合と、従来使用されている発泡樹脂（松本油脂製薬（株）製：マイクロスフェアF-50（商品名））を使用した場合とで、セラミック坏土を調製する際の混練時間を変えながら、成形体の成形状態及び最終的に得られたセラミック多孔質体の気孔率の比較を行い、その結果を表2に示した。なお、原料等の配合は表2に示すとおりであり、セラミック坏土の調製、成形方法、成形体形状、乾燥・焼成方法等については、前記（実施例1～7、比較例1 及び 2）に準じた。成形体の成形状態については、成形体の表面にササクレ状の欠陥が無く良好な表面状態のものを「○」、成形体の表面にササクレ状の欠陥が若干有るものを「△」、成形体の表面にササクレ状の欠陥が多いものを「×」とした。

#### 【0025】

【表2】

	嵩密度	比較例3	比較例4	実施例8	実施例9
タルク	2.6 $\text{g}/\text{cm}^3$	40.0 質量%	40.0 質量%	40.0 質量%	40.0 質量%
カオリン	2.6 $\text{g}/\text{cm}^3$	19.0 質量%	19.0 質量%	19.0 質量%	19.0 質量%
シリカ	2.6 $\text{g}/\text{cm}^3$	12.5 質量%	12.5 質量%	0.0 質量%	0.0 質量%
アルミナ	3.9 $\text{g}/\text{cm}^3$	13.5 質量%	13.5 質量%	13.5 質量%	13.5 質量%
水酸化アルミニウム	2.8 $\text{g}/\text{cm}^3$	15.0 質量%	15.0 質量%	15.0 質量%	15.0 質量%
シリカゲル	0.45 $\text{g}/\text{cm}^3$	0.0 質量%	0.0 質量%	12.5 質量%	12.5 質量%
発泡樹脂	0.03 $\text{g}/\text{cm}^3$	2.5 質量%	2.5 質量%	0.0 質量%	0.0 質量%
バインダー	1.1 $\text{g}/\text{cm}^3$	4.0 質量%	4.0 質量%	4.0 質量%	4.0 質量%
成形助剤	1.0 $\text{g}/\text{cm}^3$	0.5 質量%	0.5 質量%	0.5 質量%	0.5 質量%
水	1.0 $\text{g}/\text{cm}^3$	35.0 質量%	35.0 質量%	48.6 質量%	48.6 質量%
混練時間		30min	60min	30min	60min
成形状態		×	○	△	○
気孔率		58.0%	51.2%	56.1%	56.3%

#### 【0026】

表2に示すとおり、造孔剤として発泡樹脂を添加することによっても、高い気孔率を得ることは可能であるが、良好な成形状態を得るためには、セラミック坏土を調製する際の混練時間を長くする必要があり、それによって気孔率が低下する。一方、造孔剤としてシリカゲルを用いた場合においては、混練時間を長くすることによる気孔率の変動は小さく、高気孔率を保持したまま良好な成形状態の成形体を得ることができる。

#### 【産業上の利用可能性】

#### 【0027】

本発明のセラミック多孔質体は、フィルターや触媒担体等として、例えば内燃機関等の熱機関又はボイラー等の燃焼装置における排気ガス浄化装置、液体燃料又は気体燃料の改質装置、上下水の浄化処理装置等に好適に使用することができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 その製造時において、造孔剤の可燃分に由来する焼成時間の増加や有害ガス等の発生を回避でき、造孔特性の変化や成形体の変形も生じにくいセラミック多孔質体を提供する。

【解決手段】 化学成分として少なくともS iが含まれているセラミック多孔質体であって、成形原料中に多孔質のシリカ粉末を添加して坏土化し、得られたセラミック坏土を所定形状に成形した後、焼成することにより得られたセラミック多孔質体。

【選択図】 なし

## 出願人履歴

0 0 0 0 0 4 0 6 4

19900824

新規登録

5 9 8 1 7 1 0 4 7

愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号

日本碍子株式会社